

プログラム名：超薄膜化・強靱化「しなやかなタフポリマー」の実現

PM名：伊藤 耕三

プロジェクト名：破壊機構の分子的解明プロジェクト

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成28年度

研究開発課題名：

タフポリマー実現のための放射光構造科学基盤の構築

研究開発機関名：

国立研究開発法人理化学研究所

研究開発責任者

高田 昌樹

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

a) 放射光分析プラットフォームの構築

多様な放射光分析手法の中から、タフポリマー実現に資する技術を先鋭化し、プロジェクトに広く提供可能とすることを目的として、放射光分析プラットフォームの構築を進める。特に、中心的基盤であるタフポリマー専用の実験ステーションでは、分子構造評価に焦点を当て、既存のビームライン設備では実施できない多様な条件下での計測に対応可能なプラットフォームの構築を進め、本年度より ImPACT 参画機関への提供を開始する。

b) 放射光高輝度光を利用した測定・解析手法の提案・実施

タフネス化を目指す各種ポリマー材料について、放射光の高輝度性を生かした測定・解析手法を提案し実施する。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

a) 放射光分析プラットフォームの構築

タフポリマーの分子構造の評価基盤として SPring-8 BL05SS において、小角・広角散乱およびX線光子相関分光測定を実施可能な専用実験ステーションの構築を進めた。構築の概要は、図1に示すように、光学系整備、実験ハッチ整備、光源アップグレードに分けられる。

光学系整備においては、入射X線の発散を抑えて高い空間分解能で小角散乱測定を行うためのミラーを光学ハッチに設置し、ミラー反射による光路変更に合わせて口径の大きなビーム輸送系に取り換えた。

実験ハッチには、試料-検出器間距離を 0.1~4 m の範囲で変更可能な真空パスを含む小角・広角散乱装置を導入した。上流の4象限スリットで成形された入射X線が試料に照射され、得られた散乱X線は下流の2次元検出器により検出される。ポリマーのタフネス評価においては、種々の変形・破壊装置を持ち込んでの実験が必要である。そこで本実験ステーションでは、試料設置空間 (1m×2m) にフリースペースを確保し、試料-検出器間距離の調整は検出器を光軸上でスライドさせる方式を採用した。これらの装置を10月までの期間で整備し、10月末より ImPACT 参画機関への供用を開始した。

さらに、1-3月のSPring-8運転停止期間に光源の真空封止アンジュレータへのアップグレードを実施し、入射X線の輝度を1桁向上させた。

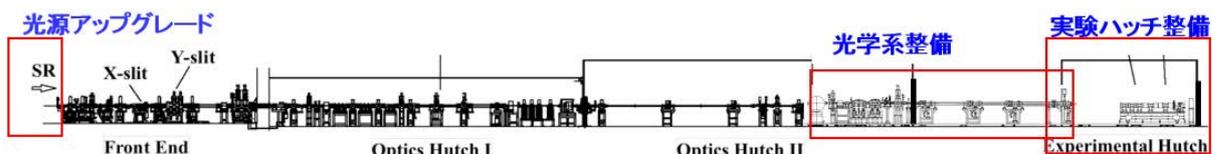


図1 タフポリマー専用実験ステーション

b) 放射光高輝度 X 線を利用した測定・解析手法の提案・実施

参画企業と個別の課題について情報交換・議論を進め、測定・解析手法の検討を行った。昨年度より実施している研究テーマを発展させ、燃料電池電解質膜一軸伸長下における構造観察、タイヤ材料の充填剤分散状態評価を SPring-8 において実施する研究テーマとして、各課題を解決するための解析を実施した。

b-1)燃料電池電解質膜の一軸伸張下における構造観察

燃料電池電解質膜は、高分子主鎖の結晶構造や、親水性側鎖と含有する水分子からなるクラスターなど様々なスケールの構造を持ち、これを X 線散乱で捉えることができる。2016 年度は、BL05SS 並びに理研小角散乱ビームライン BL45XU の高輝度ビームを用いて、フレミオン薄膜を一軸伸長させながら、その小角及び広角 X 線散乱の時分割測定を行った。企業との情報交換を定期的に行い、化学構造や成形条件の差によってタフネスの異なる試料の提供を受けて測定を行うことで、薄膜の破壊メカニズムと強靱化のための材料設計指針を明らかにするための研究を進めた。

b-2)タイヤ材料における充填剤分散状態評価

タイヤ材料に含まれるシリカ粒子やカーボンブラックなどの充填剤の分散状態とタイヤの亀裂進展との関係を X 線小角散乱データから明らかにするため、逆モンテカルロ法(RMC)を用いた解析プログラムの開発を進めた。既存のプログラムコードを基盤とし、大量のデータを処理可能なコードへと書き換えることで、数十万粒子を含んだタイヤ材料への最適化を進めた。

2-2 成果

a)放射光分析プラットフォームの構築

SPring-8 BL05SS にタフポリマー専用の実験ステーションを構築し、10 月に ImPACT 参画機関への内覧会を実施し、10 月末より参画機関への利用提供を開始した。97%の利用率で実験が実施され、4 企業プロジェクトおよび 6 アカデミア機関が利用した。

b) 放射光高輝度 X 線を利用した測定・解析手法の提案・実施

燃料電池電解質膜の外部応力に対する構造変化を観測するために、双方向駆動型の一軸伸長試験器を開発した。小角及び広角 X 線散乱の時分割測定を伸張したセパレータ膜に適用した結果、降伏応力より手前でも水クラスターや結晶の高次構造にひずみに由来する小角領域でのピークの変化が観測された。一方で、降伏点以降では広角領域のピークについても変化が見られ、主鎖の伸長結晶化が生じていることを明かにした。変形の過程に応じて生じるこれらの挙動はタフネスを向上させた試料では異なることが見出されている。

タイヤ材料の充填剤分散状態評価については、プログラムコードの高速化を完了し、数時間で数十万粒子の配置探索を扱うことを可能とした。引き続き、本プログラムコードを、SPring-8 で得られた小角散乱測定データへの適用を進めており、粒子配置とタフネスの相関を定量化するための汎用手法として確立していく予定である。

2-3 新たな課題など

該当する記載事項無し

3. アウトリーチ活動報告

該当する記載事項無し